

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

日 本 国 特 許 庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2000年 5月26日

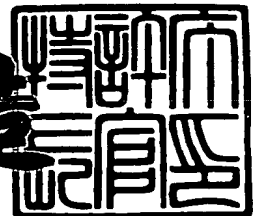
出 願 番 号
Application Number: 特願2000-157189

出 願 人
Applicant(s): 株式会社リケン

2001年 3月 2日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3009065

【書類名】 特許願

【整理番号】 RK-0462

【提出日】 平成12年 5月26日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/00

【発明者】

 【住所又は居所】 埼玉県熊谷市末広四丁目 1 4 番 1 号 株式会社リケン熊谷事業所内

 【氏名】 高 云智

【発明者】

 【住所又は居所】 埼玉県熊谷市末広四丁目 1 4 番 1 号 株式会社リケン熊谷事業所内

 【氏名】 国元 晃

【特許出願人】

 【識別番号】 000139023

 【氏名又は名称】 株式会社リケン

 【代表者】 小口 邦彦

【代理人】

 【識別番号】 100080012

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 高石 橋馬

 【電話番号】 03(5228)6355

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 009324

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 要約書 1

 【物件名】 図面 1

【包括委任状番号】 9706821

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用セパレータ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 アルミニウム金属板からなり、電極又は集電体との接触面及び反応ガス通気溝を有する燃料電池用セパレータにおいて、前記反応ガス通気溝の表面にアルマイト被膜が形成されていることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】 請求項 1 に記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記電極又は集電体との接触面に導電性被膜が形成されていることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】 請求項 2 に記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記導電性被膜が Pt、Au、Pd、Ru、Rh、Ir 及び Ag からなる群から選ばれる金属若しくはその合金、カーボン、又は導電性炭化物からなることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 4】 請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記アルマイト被膜の多孔度が 5 % 以下であることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 5】 請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記アルマイト被膜の膜厚が 5 ～ 50 μm であることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 6】 請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記アルマイト被膜が、多孔度 5 % 以下の緻密質アルマイト被膜及び該緻密質アルマイト被膜上に形成される多孔度 10 % 以上の多孔質アルマイト被膜により構成されることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 7】 請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記反応ガス通気溝内の壁面同士がなす角部が 0.5mm 以上の曲率半径を有する曲面状であることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 8】 請求項 1 ～ 7 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記反応ガス通気溝の側面と前記接触面とがなす角部が 0.3mm 以上の曲率半

径を有する曲面状であることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 9】 請求項 1～8 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータにおいて、前記アルミニウム金属板の純度が 99.5% 以上であることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は燃料電池、特に自動車の動力用車載燃料電池に用いるセパレータに関する。

【0002】

【従来の技術】

燃料電池は燃料から電気へのエネルギー変換効率が高く、有害物質を排出しないため、次世代の発電装置として注目されている。特に、150℃以下の温度領域で作動する高分子イオン交換膜型燃料電池は盛んに研究されており、数年後の実用化が見込まれている。この燃料電池は比較的低い温度で作動でき、発電の出力密度が高く、小型化が可能であるため家庭用や車載用の燃料電池として適している。

【0003】

通常、高分子イオン交換膜型燃料電池は、固体電解質膜の両面に燃料電極及び酸素電極（空気電極）を固定して単電池（セル）を形成し、これを燃料ガスと空気を供給する通気溝を設けた板状セパレータを介して積層することにより構成される。固体電解質膜としてはスルホン酸基を有するフッ素樹脂系イオン交換膜等が用いられ、電極はカーボンブラックに撥水材 PTFE と貴金属微粒子触媒を分散したもの等により形成する。水素－酸素燃料電池が作動する際には、水素ガスが酸化されて生じたプロトンが電解質中に進入し水分子と結合して H_3O^+ となり、正極側に移動する。正極側では通気溝から導入された酸素が水素の酸化反応により発生する電子を得て、電解質中のプロトンと結合し水となる。これらの反応過程を継続することにより電気エネルギーを連続的に取り出すことができる。この単電池の理論起電力は 1.2V であるが、実際には電極の分極、反応ガスのクロスオーバ

ー（燃料ガスが電解質を透過して空気電極に漏れる現象）、電極及び集電体の接触抵抗による電圧降下等の原因で、出力電圧は0.6～0.8V程度である。従って、実用的な出力を得るためには、セパレータを介して数十の単電池をスタックし直列的に接続する必要がある。

【0004】

前述の発電原理から解るように、電解質中には H^+ が多量に存在するので、水又は水蒸気が多量に存在する電解質内部と電極の近傍では強酸性となる。また正極側で酸素が H^+ と結合して水を生成するが、電池の作動状態によっては過酸化水素が生成する場合がある。セパレータはこのような環境下に組み込まれるので、電気伝導性及び気密性に加えて、高い化学・電気化学的安定性（耐食性）を有することが要求される。

【0005】

従来の燃料電池用セパレータの多くは黒鉛板を機械加工したものである。黒鉛セパレータは電気抵抗が低く耐食性が高い反面、機械強度が低く加工コストが高い。車載用燃料電池に用いるセパレータは高い機械強度を有し低コストで加工可能であることが要求されるので、現状の黒鉛セパレータをそのまま車載用燃料電池に適用することは困難である。近年、黒鉛粉末を樹脂と混合して射出成形し、更に高温焼成することによりセパレータを製造する方法が検討されているが、得られる焼成体の密度が低いため気密性が悪いという問題がある。このセパレータを樹脂で浸漬し炭化再焼成することによって密度を高めることは可能であるが、製造工程が煩雑になる。加えて、このように製造されたセパレータの接触電気抵抗は従来の黒鉛セパレータより数倍大きく、電池の出力電圧低下が避けられない。

【0006】

黒鉛セパレータ以外に、金属からなるセパレータも検討されている。金属セパレータはバルク電気抵抗が低く、高い気密性及び機械強度を有し、加工コストの低減が容易である。また、セパレータの厚さを薄くできるので小型化が容易である。更に、アルミニウムのような低比重金属材料を用いると燃料電池を一層軽量化することができる。しかしながら、金属セパレータにおいては、基材の金属そ

のものが腐食しやすいという問題がある。特にアルミニウム基材は非常に腐食速度が大きいことが報告されている (R. L. Rorup, et al., Mater. Res. Soc. Symp. Proc., 393 (1995)等)。また、腐食により生成した金属イオンが電解質膜に進入すると、膜のイオン伝導性が低下し電池の性能に影響を与える恐れがある。

【 0 0 0 7 】

特開平11-162478号は、貴金属を金属セパレータの全表面にメッキすることにより、耐食性を改善する手法を開示している。この手法はセパレータ性能に関しては問題が無いが、高コスト化を招き実用的ではない。コスト低減のためには貴金属メッキ層を薄くする必要があるが、湿式メッキの際に層厚を薄くすると微細なピンホールが発生し腐食の原因となり、また乾式メッキ（蒸着、スパッタ等）では生産効率が悪く、被膜の均一性も悪化してしまう。

【 0 0 0 8 】

【発明が解決しようとする課題】

従って本発明の目的は、優れた耐食性を有するアルミニウム製燃料電池用セパレータを提供することである。

【 0 0 0 9 】

【課題を解決するための手段】

上記課題に鑑み鋭意研究の結果、本発明者らは、一部にアルマイト被膜を設けたアルミニウム製燃料電池用セパレータは優れた耐食性を示すことを発見し、本発明に想到した。

【 0 0 1 0 】

すなわち、本発明の燃料電池用セパレータはアルミニウム金属板からなり、電極又は集電体との接触面及び反応ガス通気溝を有し、該反応ガス通気溝の表面にはアルマイト被膜が形成されていることを特徴とする。

【 0 0 1 1 】

また、本発明のセパレータは下記条件(1)～(8)を満たすことにより、一層優れた耐食性を示す。

(1)電極又は集電体との接触面には導電性被膜を形成するのが好ましい。

- (2)導電性被膜はPt、Au、Pd、Ru、Rh、Ir及びAgからなる群から選ばれる金属若しくはその合金、カーボン、又は導電性炭化物からなるのが好ましい。
- (3)アルマイト被膜の多孔度は5%以下であるのが好ましい。
- (4)アルマイト被膜の膜厚は5～50 μ mであるのが好ましい。
- (5)アルマイト被膜は、多孔度5%以下の緻密質アルマイト被膜及びその上に形成される多孔度10%以上の多孔質アルマイト被膜により構成されるのが好ましい。
- (6)反応ガス通気溝内の壁面同士がなす角部は0.5mm以上の曲率半径を有する曲面状であるのが好ましい。
- (7)反応ガス通気溝の側面と上記接触面とがなす角部は0.3mm以上の曲率半径を有する曲面状であるのが好ましい。
- (8)アルミニウム金属板の純度は99.5%以上であるのが好ましい。

【 0 0 1 2 】

【発明の実施の形態】

本発明の燃料電池用セパレータはアルミニウム金属板からなり、その一部にはアルマイト被膜が形成されている。アルミニウム金属を基材として用いることにより、セパレータの軽量化や電気伝導性及び耐震性能の向上を図ることができる。本発明のセパレータは様々な燃料電池に使用でき、特に自動車の動力用車載燃料電池に好適に利用できる。以下、本発明のセパレータを図1～4を用いて詳述するが、本発明はそれらに限定されず、本発明の趣旨を変更しない限り種々の変更を加えることができる。

【 0 0 1 3 】

図1は本発明の一実施例による燃料電池用セパレータを含む燃料電池の一例を示す部分概略図である。図1の燃料電池は、固体電解質2とその両側に設けられたアノード3及びカソード4からなる単電池1を、セパレータ5を介して積層して構成されている。積層の両端は外部回路（図示せず）に接続される。

【 0 0 1 4 】

本発明のセパレータは電極又は集電体との接触面を有する。該接触面の形状は、燃料電池の電極又は一次集電体のカーボンペーパー、カーボクロス等と接触

するために適した形状であればよく、図 1 により限定されない。

【0015】

図 1 に示すように、本発明のセパレータ 5 は反応ガス通気溝 8 及び 9 を有する。反応ガス通気溝 9 とアノード 3 により形成される通路には燃料ガスが供給され、反応ガス通気溝 8 とカソード 4 により形成される通路には酸化剤ガスが供給される。反応ガス通気溝 8 及び 9 は機械加工、プレス、精密鑄造、化学研磨（エッチング）、電解研磨等の方法により所定パターンに形成すればよい。反応ガス通気溝の形状は図 1 ではコ字型としたが、電極に接する部分に反応ガス用通路が形成できる形状であれば特に限定されず、反応ガス通気抵抗が小さく、且つ発電効率が高くなるように設定するのが好ましい。通常、各反応ガス通気溝の深さは 0.2 ～ 2 mm とするのが好ましく、幅は 0.5 ～ 5 mm とするのが好ましい。

【0016】

本発明においては、セパレータの耐食性を確保するために、電極等と接触しない上記反応ガス通気溝の表面には化学的及び物理的に安定なアルマイト被膜 6 を形成する。アルマイト被膜は陽極酸化法等により形成でき、例えば電解液としてシュウ酸、硫酸、クロム酸等の水溶液を用いて電解することにより、 γ -アルミナ被膜を母材表面に形成すればよい。

【0017】

陽極酸化条件を適宜選択することにより、緻密な硬質アルマイト被膜を形成することができ、より一層の耐食性向上を図ることが可能である。また、陽極酸化処理を施した後、沸騰水又は水蒸気で処理すると、アルマイト被膜に特有な微細孔を閉じることができ耐食性を更に改善することができる。アルマイト被膜の多孔度は 5 % 以下とするのが好ましい。また、アルマイト被膜の膜厚は 5 ～ 50 μm とするのが好ましく、10 ～ 30 μm とするのがより好ましい。

【0018】

アルマイト被膜に微細な垂直細孔や海綿状の多孔質層を形成することも可能である。本発明では、図 2 に示すように、セパレータ 5 のアルマイト被膜 6 を緻密質アルマイト被膜 11 及びその上に形成される多孔質アルマイト被膜 10 から構成するのが、長期間の耐食性保持の観点から好ましい。この緻密質アルマイト被膜の

多孔度は5%以下とするのが好ましく、多孔質アルマイト被膜の多孔度は10%以上とするのが好ましい。この場合、緻密質アルマイト被膜の膜厚は2~30 μm とするのが好ましく、多孔質アルマイト被膜の膜厚は5~50 μm とするのが好ましい。アルマイト被膜の耐食性劣化の原因は、被膜が水蒸気中で膨潤成長し膜歪みを生じることにより発生するクラックや剥離であると考えられるが、前述のような多孔質アルマイト被膜を形成することにより、膜歪みを緩和することができる。

【0019】

アルミニウム基材中の不純物が多いとアルマイト被膜の均一性が悪化し、密度が低くなる。更にこのような場合、被膜が一旦形成されると沸騰水、水蒸気等を用いた緻密化処理の効果が小さくなる。従って、本発明のセパレータに用いるアルミニウム金属の純度は99.5%以上であるのが好ましく、99.9%以上であるのがより好ましい。また、アルミニウム基材の厚さは特に限定されないが、車載用燃料電池に用いる場合は0.5~3mmとするのが好ましい。

【0020】

本発明においては、図1に示すように、電極又は集電体との接触面（電気伝導面）には導電性被膜7を形成するのが好ましい。すなわち、本発明のセパレータの全表面は非導電性アルマイト被膜及び導電性被膜により覆うのが好ましい。

【0021】

導電性被膜は電気伝導性の良い耐食性を有する材料を用いて形成するのが好ましく、Pt、Au、Pd、Ru、Rh、Ir及びAgからなる群から選ばれる金属若しくはその合金、カーボン、又は導電性炭化物により形成するのがより好ましい。Au、Ag、Pt、Pd等の貴金属系被膜は、接触抵抗が低く耐食性も極めて良好である。カーボンとしてはCVDによる黒鉛膜、DLC膜（ダイヤモンドライクカーボン膜）等が好ましい。また黒鉛粉に撥水剤を添加したものを塗布しても良い。電極がカーボンブラックに微量のPtを添加したもの等からなる場合、カーボン被膜を用いると接触なじみが良い。導電性炭化物としては炭化ケイ素、炭化ニオブ、炭化タングステン等が好ましい。炭化物被膜は接触抵抗が小さいのみならず、良好な耐食性及び耐酸化性を有するので、セパレータの保護膜としても作用する。

【 0 0 2 2 】

導電性被膜はスパッタ法、電気メッキ、湿式メッキ、CVD等の方法により形成できる。また導電性被膜の膜厚は $0.01 \sim 5 \mu\text{m}$ とするのが好ましい。膜厚が $0.01 \mu\text{m}$ より小さいと膜強度が弱く不安定であり、 $5 \mu\text{m}$ より大きいとコストが高くなるため好ましくない。

【 0 0 2 3 】

セパレータを燃料電池中に組み込む際には、一般に気密性及び導電部の接触性を向上させるためにスタック方向に沿って締め付ける。このとき面圧力は約 $1 \sim 10 \text{kg/cm}^2$ となる。また燃料電池の作動温度は通常約 $80 \sim 120^\circ\text{C}$ であり、温度変化によるセパレータの熱膨張変形が起こることが多い。応力がかかりやすい箇所のアルマイト被膜には亀裂・破損が発生しやすく、それにより耐食性が大幅に低下する場合がある。従って、本発明では応力を緩和するために反応ガス通気溝内の壁面同士がなす角部（図3中、Rで示す）は曲面状とするのが好ましい。この曲面の曲率半径は 0.5mm 以上とするのが好ましく、 1.0mm 以上とするのがより好ましい。

【 0 0 2 4 】

上記アルマイト被膜と導電性被膜の境界部には応力が集中しやすい。またこの二種類の被膜を形成する際には、基材表面に対して垂直方向に被膜が成長し横方向には成長しないため、上記境界部のアルマイト被膜は非常に破損しやすい。従って本発明では、ガス通気溝の内部側面と上記接触面とがなす角部（図4中、Rで示す）は曲面状とするのが好ましい。この曲面の曲率半径は 0.3mm 以上とするのが好ましく、 0.5mm 以上とするのがより好ましい。またこのようにすることで、前述のアルマイト被膜の膨潤成長に由来する膜歪みを緩和する効果も得られると考えられる。

【 0 0 2 5 】

【実施例】

以下、実施例により本発明をより詳細に説明するが、本発明はそれらに限定されるものではない。

【 0 0 2 6 】

実施例 1 及び比較例 1～3

純度99.6%のアルミニウム金属板（1mm×150mm×150mm）に、プレス加工により深さ1.0mm及び幅3.0mmの反応ガス通気溝を形成し、セパレータ基材を作製した。この基材をシュウ酸水溶液中で陽極酸化し、次いで沸騰水中に30分間浸漬し、乾燥して基材表面に膜厚12 μ mのアルマイト被膜を形成した。次に、セパレータの電極接触面の平坦度を向上させるために、電極接触面をラッピング研磨し、洗浄した。この工程により電極接触面上に形成されたアルマイト被膜は除去される。続いて、5mTorrの純アルゴンガス雰囲気中、基材温度を200℃として電極接触面にAuをスパッタして導電性被膜を形成し、本発明の一実施例によるセパレータを作製した。なお、導電性被膜の厚さは約1 μ mであった。

【0027】

100重量部のカーボンブラックに15重量部のPtペースト（Pt：90重量%）を添加し、更に15重量部のテフロン粒子（平均粒径：0.2 μ m）を撥水剤として添加して電極用ペーストを調製した。この電極用ペーストをプロトン伝導性高分子固体電解質膜（Nafion）に塗布し、乾燥した。これをカーボクロスで挟み、更に2枚の上記セパレータで挟み込んで実施例1の燃料電池（単電池）を作製した。セパレータの締め付け圧力は10kg/cm²とした。

【0028】

上記実施例1の燃料電池の作製方法と同様にして、黒鉛製セパレータを用いた比較例1の燃料電池、及びステンレス（SUS304）製セパレータを用いた比較例2の燃料電池をそれぞれ作製した。また、アルマイト被膜を形成しないこと以外は上記実施例1と同様に、比較例3の燃料電池を作製した。なお、比較例2及び3で用いたセパレータの電極接触面には上記実施例1と同様にAuからなる導電性被膜を形成した。

【0029】

得られた実施例1及び比較例1～3の燃料電池（単セル）に対して、アノード側の反応ガス通気溝に加湿した模擬燃料ガス（70% H_2 、15% CO_2 、15% H_2O ）を供給し、カソード側通気溝に酸化剤として空気を供給して、各燃料電池の発電性能の安定性を評価した。各燃料電池のセパレータ基材、初期発電電圧、10日間作動

後の発電電圧、及び10日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表1に併せて示す。

【0030】

【表1】

セパレータ基材		初期 発電電圧 (V)	10日後の 発電電圧 (V)	耐腐食状況
実施例1	アルマイト被膜付Al	0.84	0.80	腐食なし
比較例1	黒鉛	0.85	0.83	—
比較例2	ステンレス (SUS304)	0.80	0.68	溝部に若干腐食あり
比較例3	アルマイト被膜なしAl	0.82	0.59	溝部全面に腐食あり

【0031】

表1より、アルマイト被膜を設けたアルミニウム金属板からなる本発明のセパレータは優れた耐食性を示し、該セパレータを用いた実施例1の燃料電池は高い発電性能安定性を示すことがわかる。

【0032】

実施例2及び比較例4

導電性被膜の材料として表2に示す各材料を用いたこと以外は上記実施例1と同様に、実施例2a～2r及び比較例4の燃料電池をそれぞれ作製した。ただし、カーボン（実施例2q）及び導電性炭化物SiC（実施例2r）の導電性被膜を形成する際には、被膜組成のターゲットを用いスパッタガスとしてAr（30mTorr）を用いた。得られた実施例2a～2r並びに比較例1及び4の燃料電池（単セル）に対して、アノード側の反応ガス通気溝に加湿した模擬燃料ガス（70% H_2 、20% CO_2 、10% H_2O ）を供給し、カソード側通気溝に酸化剤として空気を供給して、各燃料電池の発電性能の安定性を評価した。各燃料電池の導電性被膜の材料、初期発電電圧、10日間作動後の発電電圧、及び10日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表2に併せて示す。

【0033】

【表 2】

	導電性被膜	初期 発電電圧 (V)	10日後の 発電電圧 (V)	耐腐食状況
実施例2a	Pt	0.78	0.77	腐食なし
実施例2b	Au	0.82	0.81	腐食なし
実施例2c	Pd	0.77	0.75	腐食なし
実施例2d	Ru	0.71	0.69	腐食なし
実施例2e	Rh	0.75	0.71	腐食なし
実施例2f	Ir	0.79	0.78	腐食なし
実施例2g	Ag	0.77	0.71	腐食なし
実施例2h	Pt-Au(10wt%)	0.78	0.77	腐食なし
実施例2i	Pt-Pd(10wt%)	0.78	0.74	腐食なし
実施例2j	Pt-Ru(5wt%)	0.76	0.73	腐食なし
実施例2k	Pt-Rh(5wt%)	0.75	0.72	腐食なし
実施例2l	Pt-Ir(30wt%)	0.79	0.75	腐食なし
実施例2m	Au-Pd(30wt%)	0.75	0.74	腐食なし
実施例2n	Au-Ir(30wt%)	0.69	0.66	腐食なし
実施例2o	Au-Ag(50wt%)	0.74	0.71	腐食なし
実施例2p	Pd-Ag(50wt%)	0.76	0.70	腐食なし
実施例2q	カーボン	0.82	0.81	腐食なし
実施例2r	SiC	0.84	0.83	腐食なし
比較例 1	黒鉛	0.84	0.83	—
比較例 4	Al	0.47	0.21	全面に腐食あり

【0034】

表 2 より、前述した好ましい導電性被膜を有する本発明のアルミニウム製セパレータは優れた耐食性を示し、該セパレータを用いた実施例2a～2rの燃料電池は、高い発電性能安定性を示すことがわかる。

【0035】

実施例 3

アルマイト被膜の多孔度を、形成条件を変化させることにより表 3 に示すように変えたこと以外は上記実施例 1 と同様に、実施例3a～3jの燃料電池をそれぞれ作製した。得られた実施例3a～3jの燃料電池（単セル）の発電性能の安定性を上記実施例 2 と同様に評価した。各燃料電池のアルマイト被膜の多孔度、初期発電

電圧、10日間作動後の発電電圧、及び10日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表3に併せて示す。

【0036】

【表3】

	アルマイト被膜の 多孔度 (%)	初期 発電電圧 (V)	10日後の 発電電圧 (V)	耐腐食状況
実施例3a	0.86	0.81	0.83	良好
実施例3b	1.25	0.82	0.81	良好
実施例3c	1.63	0.86	0.84	良好
実施例3d	2.01	0.83	0.81	良好
実施例3e	2.67	0.79	0.75	ほぼ良好
実施例3f	3.02	0.84	0.78	ほぼ良好
実施例3g	3.54	0.85	0.75	ほぼ良好
実施例3h	5.06	0.88	0.73	ほぼ良好
実施例3i	7.32	0.81	0.63	腐食あり
実施例3j	10.55	0.86	0.59	腐食あり

【0037】

表3より、本発明のセパレータが有するアルマイト被膜の多孔度は、5.06%以下であるのが好ましく、2.01%以下であるのがより好ましいことがわかる。

【0038】

実施例4

アルマイト被膜の膜厚を、膜形成時間を調整することにより表4に示すように変えたこと以外は上記実施例1と同様に、実施例4a～4jの燃料電池をそれぞれ作製した。なお、アルマイト被膜の多孔度は約1.25%とした。得られた実施例4a～4jの燃料電池（単セル）の発電性能の安定性を上記実施例2と同様に評価した。各燃料電池のアルマイト被膜の膜厚、初期発電電圧、10日間作動後の発電電圧、及び10日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表4に併せて示す。

【0039】

【表 4】

	アルマイト被膜の 膜厚 (μm)	初期 発電電圧 (V)	10日後の 発電電圧 (V)	耐腐食状況
実施例4a	3.5	0.86	0.71	腐食あり
実施例4b	4.8	0.83	0.81	ほぼ良好
実施例4c	9.7	0.82	0.84	良好
実施例4d	15.8	0.85	0.81	良好
実施例4e	26.7	0.88	0.86	良好
実施例4f	33.1	0.81	0.78	良好
実施例4g	51.5	0.81	0.76	ほぼ良好
実施例4h	69.1	0.85	0.69	腐食あり
実施例4i	78.3	0.88	0.63	腐食あり
実施例4j	94.6	0.86	0.56	腐食あり

【0040】

表 4 より、本発明のセパレータが有するアルマイト被膜の膜厚は、4.8～51.5 μm であるのが好ましく、9.7～33.1 μm であるのがより好ましいことがわかる。

【0041】

実施例 5

アルマイト被膜の形成中に電解条件を変えることにより、途中から膜の多孔度を変え、緻密質アルマイト被膜上に表 5 に示す多孔度を有する多孔質アルマイト被膜（膜厚：約10～30 μm ）を形成したこと以外は上記実施例 1 と同様に、実施例5a～5gの燃料電池をそれぞれ作製した。なお、緻密質アルマイト被膜の膜厚は約15 μm とし、多孔度は1.25%とした。得られた実施例5a～5gの燃料電池（単セル）の発電性能の安定性を上記実施例 2 と同様に評価した。ただし、評価は36日間行った。各燃料電池の多孔質アルマイト被膜の多孔度、初期発電電圧、36日間作動後の発電電圧、及び36日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表 5 に併せて示す。

【0042】

【表 5】

	多孔質アルマイト 被膜の多孔度 (%)	初期 発電電圧 (V)	36日後の 発電電圧 (V)	耐腐食状況
実施例5a	5.6	0.79	0.67	腐食あり
実施例5b	9.4	0.82	0.78	ほぼ良好
実施例5c	19.4	0.86	0.83	良好
実施例5d	26.1	0.85	0.82	良好
実施例5e	36.7	0.84	0.82	良好
実施例5f	39.4	0.80	0.77	良好
実施例5g	46.2	0.83	0.79	良好

【0043】

表5より、本発明のセパレータのアルマイト被膜を緻密質アルマイト被膜及び多孔質アルマイト被膜により構成する場合、多孔質アルマイト被膜の多孔度は9.4%以上であるのが好ましく、19.4%以上であるのがより好ましいことがわかる。また、腐食が見られたアルマイト被膜においては、被膜のクラック周辺に腐食部が存在していることを確認した。

【0044】

実施例 6

反応ガス通気溝内の壁面同士がなす角部を、表6に示す曲率半径を有する曲面状としたこと以外は上記実施例1と同様に、実施例6a～6gの燃料電池をそれぞれ作製した。なお、アルマイト被膜の厚みは約15 μm とし、多孔度は1.25%とした。得られた実施例6a～6gの燃料電池（単セル）の発電性能の安定性を上記実施例2と同様に評価した。ただし、評価は34日間行った。各燃料電池の上記曲率半径及び34日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表6に併せて示す。

【0045】

【表 6】

	曲率半径 (mm)	耐腐食状況
実施例6a	0.1	腐食あり
実施例6b	0.2	腐食あり
実施例6c	0.3	腐食あり
実施例6d	0.5	ほぼ良好
実施例6e	0.7	ほぼ良好
実施例6f	1.0	良好
実施例6g	1.5	良好

【0046】

表 6 より、本発明のセパレータの上記曲率半径は0.5mm以上であるのが好ましく、1.0mm以上であるのがより好ましいことがわかる。また、腐食が見られたアルマイト被膜においては、鋭角加工部での被膜のクラック周辺に腐食部が存在していることを確認した。

【0047】

実施例 7

反応ガス通気溝の側面と電極接触面とがなす角部を、表 7 に示す曲率半径を有する曲面状としたこと以外は上記実施例 1 と同様に、実施例 7a～7g の燃料電池をそれぞれ作製した。なお、反応ガス通気溝内の壁面同士がなす角部は曲面状とし、その曲面の曲率半径は1.0mmに固定した。また、アルマイト被膜の厚みは約15 μm とし、多孔度は1.25%とした。得られた実施例 7a～7g の燃料電池（単セル）の発電性能の安定性を上記実施例 2 と同様に評価した。ただし、評価は34日間行った。各燃料電池の反応ガス通気溝の側面と電極接触面とがなす角部曲面の曲率半径、初期発電電圧、34日後の発電電圧、及び34日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表 7 に併せて示す。

【0048】

【表 7】

	曲率半径 (mm)	初期 発電電圧 (V)	34日後の 発電電圧 (V)	耐腐食状況
実施例7a	0.1	0.80	0.67	腐食あり
実施例7b	0.2	0.81	0.72	腐食あり
実施例7c	0.3	0.80	0.78	ほぼ良好
実施例7d	0.5	0.78	0.70	良好
実施例7e	0.7	0.83	0.81	良好
実施例7f	1.0	0.80	0.78	良好
実施例7g	1.5	0.82	0.79	良好

【0049】

表7より、本発明のセパレータの上記曲率半径は0.3mm以上であるのが好ましく、0.5mm以上であるのがより好ましいことがわかる。また、腐食が見られたアルマイト被膜においては、鋭角加工部での被膜のクラック周辺に腐食部が存在していることを確認した。

【0050】

実施例 8

アルミニウム基材の純度を表8に示すように変えたこと以外は上記実施例1と同様に、実施例8a～8fの燃料電池をそれぞれ作製した。得られた実施例8a～8fの燃料電池（単セル）の発電性能の安定性を上記実施例1と同様に評価した。ただし、評価は12日間行った。各燃料電池のアルミニウム基材の純度、初期発電電圧、12日後の発電電圧、及び12日間作動後のセパレータの耐腐食状況を表8に併せて示す。

【0051】

【表 8】

	アルミニウム基材の 純度 (%)	初期 発電電圧 (V)	12日後の 発電電圧 (V)	耐腐食状況
実施例8a	99.23	0.78	0.63	腐食あり
実施例8b	99.50	0.81	0.74	ほぼ良好
実施例8c	99.76	0.79	0.74	ほぼ良好
実施例8d	99.90	0.78	0.77	良好
実施例8e	99.97	0.83	0.81	良好
実施例8f	99.99	0.85	0.83	良好

【0052】

表 8 より、本発明のセパレータに用いるアルミニウム基材の純度は99.50%以上であるのが好ましく、99.90%以上であるのがより好ましいことがわかる。

【0053】

【発明の効果】

以上詳述したように、本発明の燃料電池用セパレータはアルミニウムを主成分とするため非常に軽量であり、従来の黒鉛製セパレータに比べ量産性が高く加工コストを低減できる。更に本発明においては、基材上に適宜アルマイト被膜を形成することにより、優れた耐食性を示すアルミニウム製セパレータを得ることができる。本発明のセパレータを用いた燃料電池は高い発電性能安定性を有する。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の一実施例による燃料電池用セパレータを含む燃料電池の一例を示す部分概略図である。

【図 2】 本発明の一実施例による燃料電池用セパレータを示す概略図、及びそのアルマイト被膜の構造を示す部分拡大図である。


【図 3】 本発明の燃料電池用セパレータの、反応ガス通気溝の形状の一例を示す部分概略図である。

【図 4】 本発明の燃料電池用セパレータの、反応ガス通気溝及び電極又は集電体との接触面の形状の一例を示す部分概略図である。

【符号の説明】



- 1 . . . 単電池
- 2 . . . 固体電解質
- 3 . . . アノード
- 4 . . . カソード
- 5 . . . セパレータ
- 6 . . . アルマイト被膜
- 7 . . . 導電性被膜
- 8、9 . . . 反応ガス通気溝
- 10 . . . 多孔質アルマイト被膜
- 11 . . . 緻密質アルマイト被膜

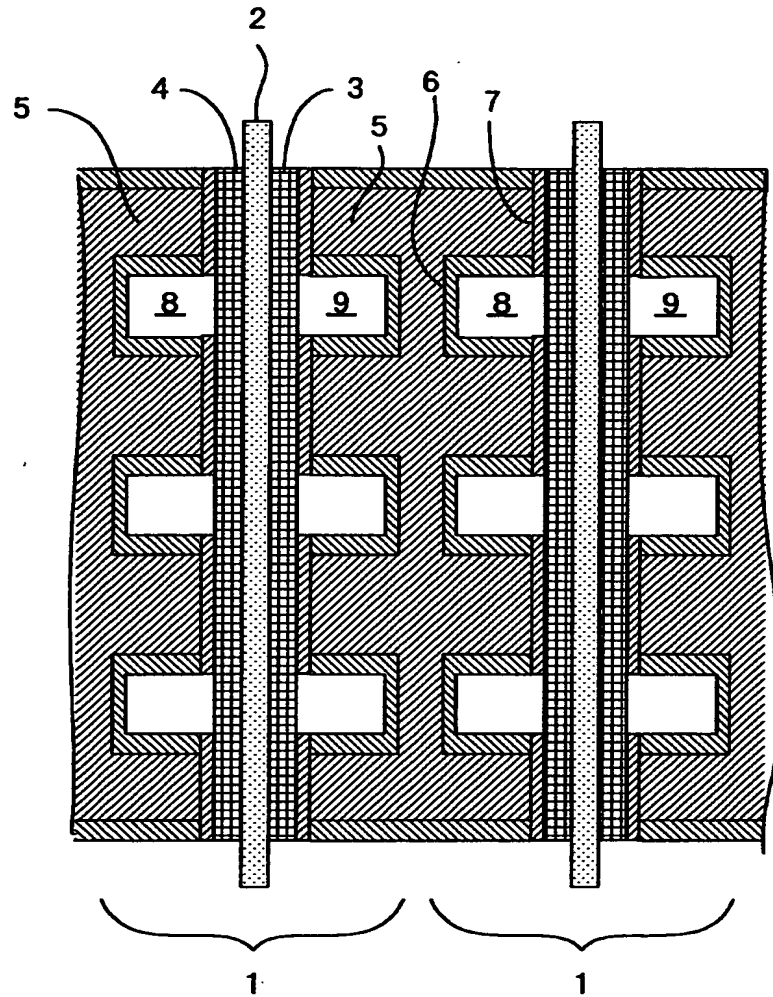


特 2 0 0 0 - 1 5 7 1 8 9

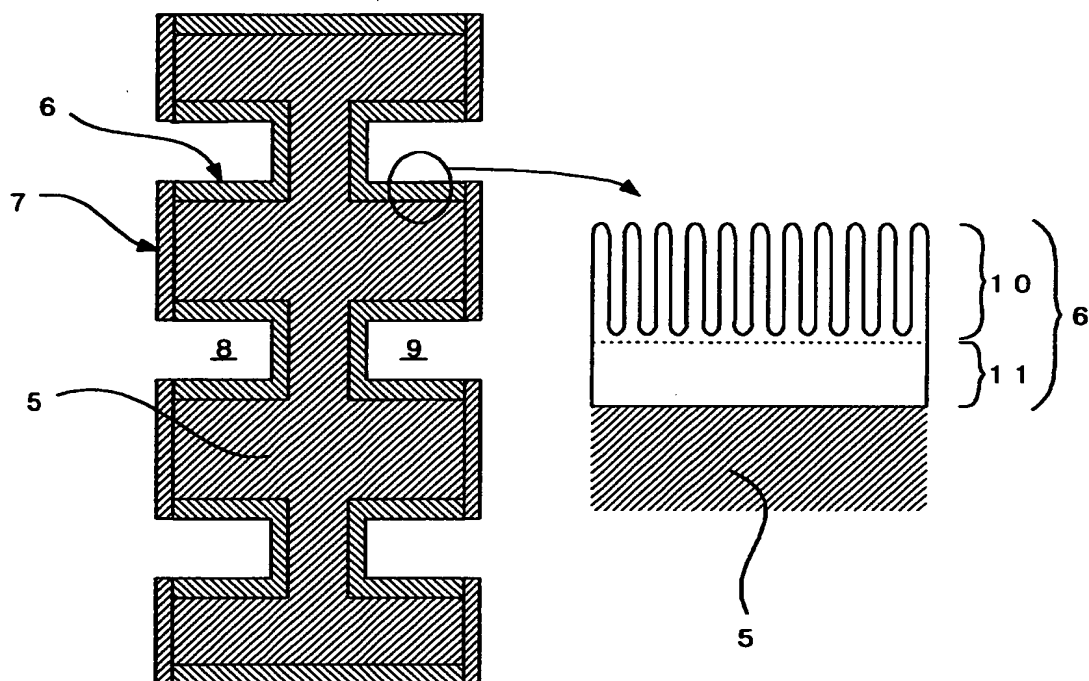
【書類名】

図面

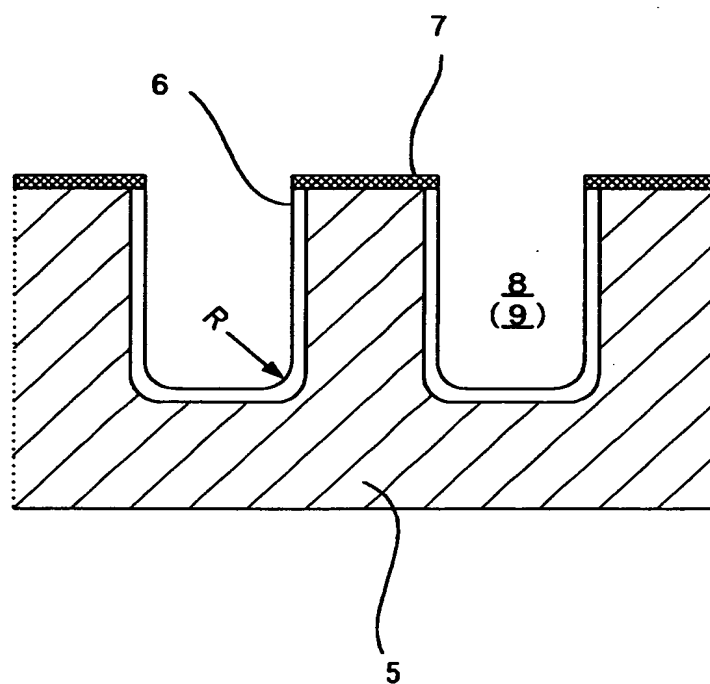
【図 1】



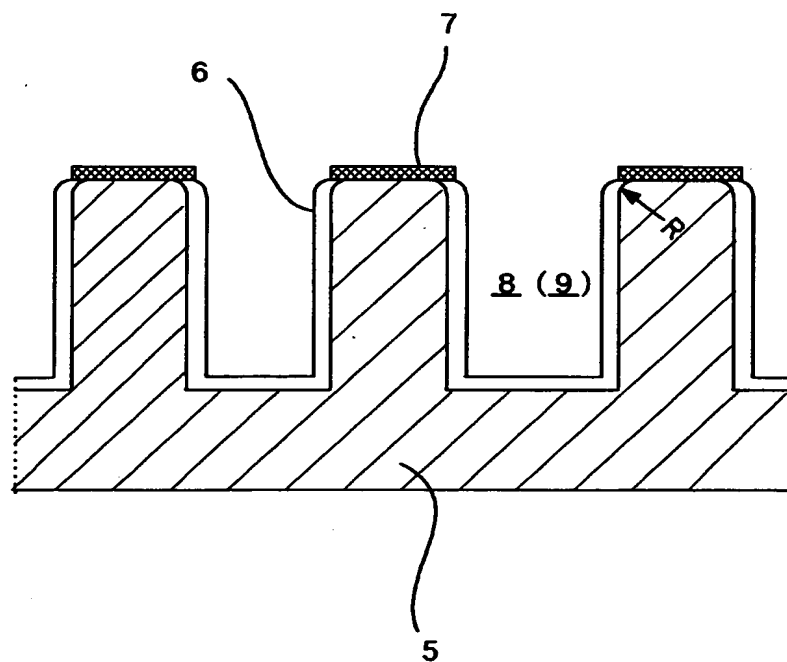
【図 2】



【図 3】



【図4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 優れた耐食性を有するアルミニウム製燃料電池用セパレータを提供する。

【解決手段】 アルミニウム金属板からなり、電極又は集電体との接触面及び反応ガス通気溝を有し、該反応ガス通気溝の表面にアルマイト被膜が形成されている燃料電池用セパレータ。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000139023]

1. 変更年月日 1990年 9月 1日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都千代田区九段北1丁目13番5号

氏 名 株式会社リケン